

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

English abstract
of Document 4)

(11)Publication number : 08-334848

(43)Date of publication of application : 17.12.1996

(51)Int.Cl.

G03C 1/015

(21)Application number : 07-140843

(71)Applicant : FUJI PHOTO FILM CO LTD

(22)Date of filing : 07.06.1995

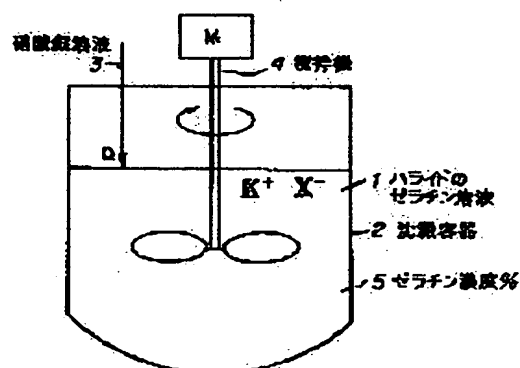
(72)Inventor : TADA SUGIHIKO
SAITO KOICHI

(54) MANUFACTURE OF PHOTOGRAPHIC EMULSION

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide the method for preparing the photographic emulsion of silver halide grains having a proper grain distribution, while restraining coagulation of the silver halide grains by a single jet process.

CONSTITUTION: The photographic emulsion is prepared by adding a silver nitrate solution 3 into a precipitation vessel 2 containing a gelatin solution 1 of single or mixed alkali metal halides to produce the silver halide grains, and at that time, the following conditions the energy ϵ_2 [N.m.s-1.kg-1] that the feed rate Q (m³/s) of the silver nitrate solution 3 and the jet of the Q into the vessel 2 satisfy the inequality (1): $1 > \epsilon_2 Q 0.6 > 1 \times 10^5$, the energy ϵ_1 [N.m.s-1.kg-1] of the stirring means 4 of the precipitation vessel 2 given to the average solution per unit weight satisfies the inequality (2): $1 > \epsilon_1 > 1 \times 10^{-4}$, and the initial gelatin concentration S in the precipitation vessel 2 must be regulated to 0.5-10%.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

06.12.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-334848

(43) 公開日 平成8年(1996)12月17日

(51) Int.Cl.⁶

G 0 3 C 1/015

識別記号

庁内整理番号

F I

G 0 3 C 1/015

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平7-140843

(22) 出願日 平成7年(1995)6月7日

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社

神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 多田 杉彦

静岡県富士宮市大中里200番地 富士写真フイルム株式会社内

(72) 発明者 齋藤 浩一

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真フイルム株式会社内

(74) 代理人 弁理士 萩野 平 (外 3 名)

(54) 【発明の名称】 写真乳剤の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 シングルジェット法においてハロゲン化銀凝集粒子の発生を抑制しつつ、適当な粒度分布を持ったハロゲン化銀粒子の写真乳剤製造方法を提案する。

【構成】 単一アルカル金属ハライドまたは混合金属ハライドのゼラチン溶液を含有する沈澱容器に、硝酸銀溶液を添加してハロゲン化銀粒子を生成させる写真乳剤の製造方法において、

① 前記硝酸銀溶液の流量 Q [m^3 / s] 及びその噴流の持ちこむ沈澱容器内の平均溶液重量当たりのエネルギー ε_2 [$\text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}$] が下記の条件(1)を満足すること、

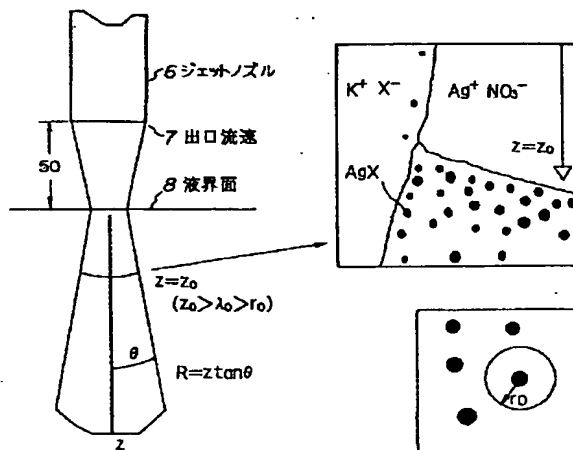
$$1 > \varepsilon_2 \cdot Q^{0.6} > 1 \times 10^{-6} \quad (1)$$

② 沈澱容器の攪拌手段の与える平均溶液重量当たりのエネルギー ε_1 [$\text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}$] が下記の条件(2)を満足すること、

$$1 > \varepsilon_1 > 1 \times 10^{-4} \quad (2)$$

及び、

③ 沈澱容器内の初期ゼラチン濃度が0.5～10%であること、を特徴としたハロゲン化銀粒子生成。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 単一アルカリ金属ハライドまたは混合金属ハライドのキゼラチン溶液を含有する沈澱容器に、硝酸銀溶液を添加してハロゲン化銀粒子を生成させる写真乳剤の製造方法において、

① 前記硝酸銀溶液の流量 Q [m^3 / S] 及びその噴流の持ちこむ沈澱容器内の平均溶液重量当たりのエネルギー ε_2 [$N \cdot m \cdot s^{-1} \cdot kg^{-1}$] が下記の条件(1)を満足すること、

$$1 > \varepsilon_2 \cdot Q^{0.6} > 1 \times 10^{-5} \quad (1)$$

② 沈澱容器の攪拌手段の与える平均溶液重量当たりのエネルギー ε_1 [$N \cdot m \cdot s^{-1} \cdot kg^{-1}$] が下記の条件(2)を満足すること、

$$1 > \varepsilon_1 > 1 \times 10^{-4} \quad (2)$$

及び、

③ 沈澱容器内の初期ゼラチン濃度が0.5%~10%であること、
を特徴とするハロゲン化銀粒子を生成させる写真乳剤の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、写真乳剤の製造方法、いわゆるシングル・ジェット法による製造方法に関するもので、更に詳しくはハロゲン化銀粒子の沈澱が適当な粒子サイズ分布を持つように、注意深く制御された条件下に実施されるものである。

【0002】

【従来の技術】 従来この方法での問題点として、硝酸銀溶液の添加方法又は攪拌方法が不適当であると、ハロゲン化銀粒子の凝集物が生成され、それによって写真乳剤としての使用が不可となることであった。このハロゲン化銀粒子の凝集物防止に関して、シングル・ジェット法でのハロゲン化銀凝集粒子の抑制に関しては、Guttoffの報告(Guttoff, E.B., Cottrill, F.R., Denk, E.G. Scale-up Factors in the Batch Precipitation of Silver Halide Photographic Emulsions. Photo.Sci.Eng. 1978, 22, 325-328) 等があるが、凝集粒子の抑制に対して十分な説明は行われていない。又特公昭59-45133号公報ではダブル・ジェット法による写真乳剤の製法に於いて、液中での添加液の高速ジェットの速度を2.44~9.14m/秒と開示されているが、シングル・ジェット法の過剰に存在するアルカリ金属ハライドとの界面で硝酸銀との反応が進行するものとは、後述するように粒子生成のメカニズムが異なっている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、シングルジェット法においてハロゲン化銀凝集粒子の発生を抑制しつつ、適当な粒度分布を持ったハロゲン化銀粒子の写真乳剤を製造する方法を提案するものであり、その方法は理論に裏付けられた実験研究によるものである。

【0004】

【課題を解決するための手段及び作用】 本発明の上記目的は、単一アルカリ金属ハライドまたは混合金属ハライドのキゼラチン溶液を含有する沈澱容器に、硝酸銀溶液を添加してハロゲン化銀粒子を生成させる写真乳剤の製造方法において、

① 前記硝酸銀溶液の流量 Q [m^3 / S] 及びその噴流の持ちこむ沈澱容器内の平均溶液重量当たりのエネルギー ε_2 [$N \cdot m \cdot s^{-1} \cdot kg^{-1}$] が下記の条件(1)を満足すること、

$$1 > \varepsilon_2 \cdot Q^{0.6} > 1 \times 10^{-5} \quad (1)$$

② 沈澱容器の攪拌手段の与える平均溶液重量当たりのエネルギー ε_1 [$N \cdot m \cdot s^{-1} \cdot kg^{-1}$] が下記の条件(2)を満足すること、

$$1 > \varepsilon_1 > 1 \times 10^{-4} \quad (2)$$

及び、

③ 沈澱容器内の初期ゼラチン濃度が0.5%~10%であること、
を特徴とするハロゲン化銀粒子を生成させる写真乳剤の製造方法。によって達成される。

【0005】 (1) 本発明の前記硝酸銀溶液の流量 Q [m^3 / S] 及びその噴流の持ちこむ沈澱容器内の平均溶液重量当たりのエネルギー ε_2 [$N \cdot m \cdot s^{-1} \cdot kg^{-1}$] が(1)式を満足するということは、ジェットの乱流拡散によるハロゲン化銀微粒子の急速な拡散による添加混合部での微粒子濃度の抑制を可能とするため、十分なジェット・エネルギーを供給することであり、上限値を超えると噴流が連続した棒状の形状を保ち得なくなる。

(2) 本発明の前記沈澱容器の攪拌手段の与える平均溶液重量当たりのエネルギー ε_1 [$N \cdot m \cdot s^{-1} \cdot kg^{-1}$] が(2)式を満足するということは、添加混合部での核発生速度を抑制するための、十分な希釈を行うためのアルカリ金属ハライド溶液の伴流を確保するために、十分な流量確保と、確保するための攪拌を与えることであり、上限値を超えると空気の巻き込みによる発泡が生じる。

(3) 本発明の初期ゼラチン濃度が0.5%以上であることは、凝集防止に必要な保護コロイド生成のためのゼラチンの所定量、0.5%以上の添加が必要となるということである。初期のゼラチン濃度が10%を超えると、次の脱塩工程でフロック形成が円滑に行えない。

【0006】 本明細書に添付する図面において図1はノズルより硝酸銀溶液が添加される沈澱容器液面付近の状態の模式図、図2は本発明を実施するための装置のダイアグラムである。乱流理論によると図1についてハロゲン化銀粒子密度 n [cm^{-3}]、乱流拡散係数 $D_{1,2}$ [$cm^2 \cdot s^{-1}$] とすると $\partial (D_{1,2} \partial n) / \partial z = 0$

(3)となり

境界条件として

$$-D_{1,2} \partial n / \partial z = b_0 ; z = z_0 \quad (4)$$

3

ただし、単位面積当たりの核発生速度 b_0 [cm^{-2}]、 z_0 は硝酸銀溶液とアルカリ金属ハライド溶液の境界面*

$$D_{\text{orb}} = \alpha (\epsilon_0 \lambda)^{1/3} \lambda \\ = \beta (\epsilon_0 / \nu)^{1/2} \lambda^2$$

ただし、 ϵ_0 は単位重量当たりのエネルギー入力 ($\text{Nm} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}$)、 λ_0 は乱流の内部スケール ($\nu^{3/4} / \epsilon_0$)^{1/4} で λ はスケール、 ν は動粘度 ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) を表す。乱流の内部スケールは約 200μ なので、生成したハロゲン化銀粒子は乱流の渦の中に包含される。そしてジェットと混合によって供給されるエネルギーは渦によって包含されるハロゲン微粒子をそれらが生成される硝酸銀溶液のジェットとハロゲン化アルカリの界面から沈澱槽内部に向かって拡散希釈させ、微粒子の密度 n を低下させ、微粒子同士の衝突の頻度を下げる働きを担う。その結果ハロゲン化銀微粒子同士の凝集を起こさない。 $z_0 \gg \lambda$ 。だから、 λ が z に比例するとして、式(3)に式(6a)を代入し、式(4)の境界条件で積分すると、ハロゲン化銀粒子密度 n は核発生領域の界面について $z = z_0$ を代入して式(7)で表される。

$$n \propto 3b_0 (\epsilon_0 z_0)^{-1/3} / \alpha \quad (7)$$

また z_0 が、噴流の流速、すなわち $\epsilon_1^{1/2} \sim \epsilon_0^{1/2}$ に比例し、 b_0 が $Q^{2/3}$ に比例するものとし、また凝集速度が n^2 に比例すると仮定すれば、凝集量 C_{Agg} (g/L) は式(8)で表される事になる。

$$C_{\text{Agg}} \propto 1 / (\epsilon_1 Q^{2/3}) \quad (8)$$

興味あることは下記実施例のデータが示すように、凝集の程度が上記の理論を適用することで説明されるように $\epsilon_2 \cdot Q^{0.6}$ が(1)式で示されるあるしきい値を越える必要があることである。一方でさらに望ましくは攪拌によるエネルギー入力が(2)式で示されるある値以上を持つことである。硝酸銀の添加方法としては、添加ノズル先端を液中に挿入する方法と、ノズル先端を液面より数 cm 以上離して噴流を垂直に下方に向かって噴出させる方法がある。本発明の実施形態はいずれの場合でも適用されるが、噴流が停止した状態でのノズル先端のハロゲン化銀粒塊の生成等のため、ノズル先端を液面より離れた状態で添加の方が望ましい。

【0007】

【実施例】

(実施例-1) ハロゲン化アルカリ混合物 (KBr 0.1, NaCl 0.5, KI 0.05 M / 1000 mL)、ゼラチン濃度 1.5% の沈澱容器内の液 5 L をバッフル付きの直径 6 cm のプロペラ型攪拌機 100 rpm で攪拌し、平均的な攪拌エネルギー入力を $0.25 \times 10^{-3} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ とし、これに硝酸銀 10.0% 水溶液 2 L を $8.3 \times 10^{-6} \text{m}^3 / \text{s}$ の流量で、ジェットノズルの出口流速が 415 m/秒として液界面から 5 cm 上の位置で下方に向けて、平均的なジェット流エネルギー入力として $1.36 \times 10^{-2} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ で添加した。得られた写真乳剤を 3μ のフィルターで

4

* の位置とする。また、 $n \rightarrow 0$ $z \rightarrow \infty$

(5) としたとき乱流拡散係数 D_{orb} は

$$\text{for } \lambda > \lambda_0 \quad (6a)$$

$$\text{for } \lambda < \lambda_0 \quad (6b)$$

濾過した所、凝集物は殆ど検出されなかった。

【0008】 (実施例-2) ハロゲン化アルカリ混合物 (KBr 0.1, NaCl 0.5, KI 0.05 M / 1000 mL)、ゼラチン濃度 1.5% の沈澱容器内の液 15 L をバッフル付きの直径 9 cm のプロペラ型攪拌機 100 rpm で攪拌し、平均的な攪拌エネルギー入力を $0.64 \times 10^{-3} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ とし、これに硝酸銀 10.0% 水溶液 6 L を $1.67 \times 10^{-5} \text{m}^3 / \text{s}$ の流量で、ジェットノズルの出口流速が 4.0 m/s として液界面から 5 cm 上の位置で下方に向けて、平均的なジェット流エネルギー入力として、 $8.49 \times 10^{-3} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ で添加した。得られた写真乳剤を 3μ のフィルターで濾過した所、凝集物は殆ど検出されなかった。

【0009】 (比較例-1) ハロゲン化アルカリ混合物 (KBr 0.1, NaCl 0.5, KI 0.05 M / 1000 mL)、ゼラチン濃度 1.5% の沈澱容器内の液 5 L をバッフル付きの直径 6 cm のプロペラ型攪拌機 100 rpm で攪拌し、平均的な攪拌エネルギー入力を $0.25 \times 10^{-3} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ とし、これに硝酸銀 10.0% 水溶液 2 L を $8.3 \times 10^{-6} \text{m}^3 / \text{s}$ の流量で、ジェットノズルの出口流速が 1.04 m/s として液界面から 5 cm 上の位置で下方に向けて、平均的なジェット流エネルギー入力として、 $1.54 \times 10^{-3} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ とし、これに写真乳剤を 3μ のフィルターで濾過した所、凝集物 1.68 g/L が検出された。

【0010】 (比較例-2) ハロゲン化アルカリ混合物 (KBr 0.1, NaCl 0.5, KI 0.05 M / 1000 mL)、ゼラチン濃度 1.5% の沈澱容器内の液 15 L をバッフル付きの直径 9 cm のプロペラ型攪拌機 100 rpm で攪拌し、平均的な攪拌エネルギー入力を $0.64 \times 10^{-3} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ とし、これに硝酸銀 10.0% 水溶液 6 L を $1.67 \times 10^{-5} \text{m}^3 / \text{s}$ の流量で、ジェットノズルの出口流速が 1.00 m/s として液界面から 5 cm 上の位置で下方に向けて、平均的なジェット流エネルギー入力として、 $0.99 \times 10^{-3} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ で添加した。得られた写真乳剤を 3μ のフィルターで濾過した所、凝集物 0.94 g/L が検出された。

【0011】 (比較例-3) ハロゲン化アルカリ混合物 (KBr 0.1, NaCl 0.5, KI 0.05 M / 1000 mL)、ゼラチン濃度 1.5% の沈澱容器内の液 15 L をバッフル付きの直径 9 cm のプロペラ型攪拌機 100 rpm で攪拌し、平均的な攪拌エネルギー入力を $0.64 \times 10^{-3} \text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ とし、これに硝酸

銀10.0%水溶液6Lを $30 \times 10^{-5} \text{ m}^3 / \text{s}$ の流量で、ノズルの出口流速が 0.91 m/s として、液界面から5cm上の位置で下方に向けて、平均的なジェット流エネルギー入力として、 $1.65 \times 10^{-3} \text{ N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{ kg}^{-1}$ で添加した。得られた写真乳剤を 3μ のフィルターで濾過した所、凝集物 0.19 g/L が検出された。

【0012】(比較例-4) ハロゲン化アルカリ混合物(KBr 0.1, NaCl 0.5, KI 0.05 M/1000 mL)、ゼラチン濃度0.2%の沈澱容器内の液15Lをバッフル付きの直径9cmのプロペラ型攪拌機100rpmで攪拌し、平均的な攪拌エネルギー入力を $0.64 \times 10^{-3} \text{ N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{ kg}^{-1}$ とし、これに硝酸銀10.0%水溶液6Lを $1.67 \times 10^{-5} \text{ m}^3 / \text{s}$ の流量で、ノズルの出口流速が 4.0 m/s として液界面から5cm上の位置で下方に向けて、平均的なジェット流エネルギー入力として、 $8.49 \times 10^{-3} \text{ N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{ kg}^{-1}$ で添加した。得られた写真乳剤を 3μ のフィルターで濾過した所、凝集物 0.78 g/L が検出された。

【0013】(比較例-5) ハロゲン化アルカリ混合物(KBr 0.1, NaCl 0.5, KI 0.05 M/1000 mL)、ゼラチン1.5%の沈澱槽内の液15Lをバッフル付きの直径9cmのプロペラ 攪拌機50rpmで攪拌し、平均的な攪拌エネルギー入力を $0.80 \times 10^{-4} \text{ Nms}^{-1} \text{ Kg}^{-1}$ とし、これに硝酸銀10.0%水溶液6Lを $1.67 \times 10^{-5} \text{ m}^3 / \text{s}$ の流量で、ノズルの出口流速が 4.0 m/s としてタンク液面から5cmの位置で下方に向けて、平均的なジェット流エネルギー

ー入力として、 $8.49 \times 10^{-3} \text{ Nms}^{-1} \text{ Kg}^{-1}$ で添加した。得られた写真乳剤を 3μ のフィルターで濾過した所、凝集物 0.02 g/L が検出された。

【0014】上記の実施例及び比較例に加えて行った実験結果を整理すると、凝集物生成を抑制するには請求範囲に示した(1)、(2)の式の範囲となる。また保護コロイドの安定性からゼラチン濃度0.5%以上が必要である。

【0015】

【発明の効果】本発明の写真乳剤の製造方法により、いわゆるシングルジェットによる製造の方法によって、凝集物が殆ど検出されなくなった。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の沈澱容器液面付近状態の模式図

【図2】本発明を用いるシングルジェット法の略図

【符号の説明】

1 ハロイドのゼラチン溶液

2 沈澱容器

3 硝酸銀溶液

4 攪拌機

5 ゼラチン濃度(%)

Q 硝酸銀の流量

ϵ_1 攪拌機によって与えられる平均溶液重量当りのエネルギー [$\text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}$]

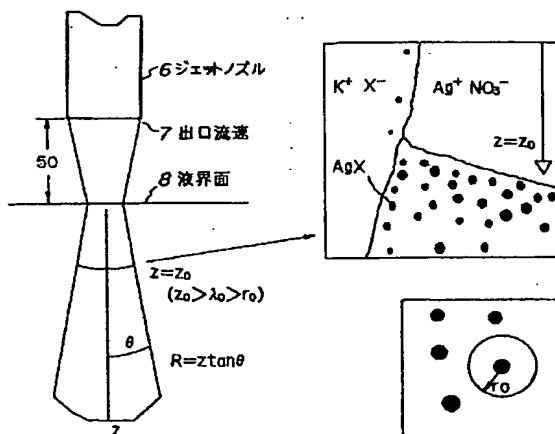
ϵ_2 硝酸銀の噴流の持ち込む沈澱容器内の平均溶液重量当りのエネルギー [$\text{N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}$]

6 ジェットノズル

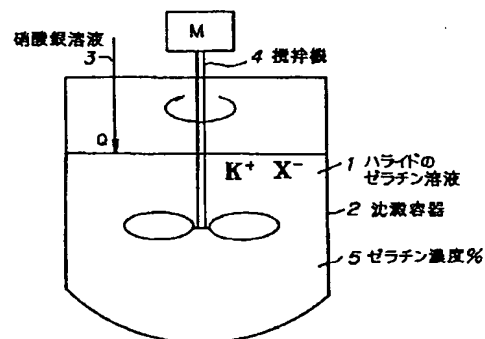
7 出口速度(m/s)

8 液界面

【図1】



【図2】



【手続補正書】

【提出日】平成7年6月28日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0006

【補正方法】変更

【補正内容】

【0006】本明細書に添付する図面において図1はノズルより硝酸銀溶液が添加される沈澱容器液面付近の状態の模式図、図2は本発明を実施するための装置のダイ*

$$D_{urb} = \alpha (\epsilon_0 \lambda)^{1/3} \lambda$$

$$= \beta (\epsilon_0 / \nu)^{1/2} \lambda^2$$

ただし、 ϵ_0 は単位重量当たりのエネルギー入力 ($\text{Nm} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}$)、 λ_0 は乱流の内部スケール (ν^3 / ϵ_0)^{1/4} で λ はスケール、 ν は動粘度 ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)を表す。乱流の内部スケールは約200 μ なので、生成したハロゲン化銀粒子は乱流の渦の中に包含される。そしてジェットと混合によって供給されるエネルギーは渦によって包含されるハロゲン微粒子をそれらが生成される硝酸銀溶液のジェットとハロゲン化アルカリの界面から沈澱槽内部に向かって拡散希釈させ、微粒子の密度 n を低下させ、微粒子同士の衝突の頻度を下げる働きを担う。その結果ハロゲン化銀微粒子同士の凝集を起こさない。 $z_0 \gg \lambda$ 。だから、 λ が z に比例するとして、式(3)に式(6a)を代入し、式(4)の境界条件で積分すると、ハロゲン化銀粒子密度 n は核発生領域の界面について $z = z_0$ を代入して式(7)で表される。

$$n \propto 3b_0 (\epsilon_0 z_0)^{-1/3} / \alpha \quad (7)$$

また z_0 が、噴流の流速、すなわち $\epsilon_1^{1/2} \sim \epsilon_0^{1/2}$

*アグラムである。乱流理論によると図1についてハロゲン化銀粒子密度 n [cm^{-3}]、乱流拡散係数 D_{urb} [$\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$]とすると $\partial (D_{urb} \partial n / \partial z) / \partial z = 0$ (3)となり境界条件として

$$-D_{urb} \partial n / \partial z = b_0 ; z = z_0 \quad (4)$$

ただし、単位面積当たりの核発生速度 b_0 [cm^{-2}]、 z_0 は硝酸銀溶液とアルカリ金属ハライド溶液の境界面の位置とする。また、 $n \rightarrow 0$ $z \rightarrow \infty$

(5)としたとき乱流拡散係数 D_{urb} は

$$\text{for } \lambda > \lambda_0 \quad (6a)$$

$$\text{for } \lambda < \lambda_0 \quad (6b)$$

に比例し、 b_0 が $Q^{0.9}$ に比例するものとし、また凝集速度が n^2 に比例すると仮定すれば、凝集量 C_{agg} (g/L)は式(8)で表される事になる。

$$C_{agg} \propto 1 / (\epsilon_1 Q^{2/3}) \quad (8)$$

興味あることは下記実施例のデータが示すように、凝集の程度が上記の理論を適用することで説明されるように $\epsilon_2 \cdot Q^{0.6}$ が(1)式で示されるあるしきい値を越える必要があることである。一方でさらに望ましくは攪拌によるエネルギー入力が(2)式で示されるある値以上を持つことである。硝酸銀の添加方法としては、添加ノズル先端を液中に挿入する方法と、ノズル先端を液面より数cm以上離して噴流を垂直に下方に向かって噴出させる方法がある。本発明の実施形態はいずれの場合でも適用されるが、噴流が停止した状態でのノズル先端のハロゲン化銀粒塊の生成等のため、ノズル先端を液面より離れた状態で添加の方が望ましい。